

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2003 年 3 月 13 日 (13.03.2003)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 03/020829 A1

- (51) 国際特許分類<sup>7</sup>: C08L 101/00, B01D 21/01, C02F 11/14
- (21) 国際出願番号: PCT/JP02/08974
- (22) 国際出願日: 2002 年 9 月 4 日 (04.09.2002)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:  
特願2001-268001 2001 年 9 月 4 日 (04.09.2001) JP  
特願2001-314507 2001 年 10 月 11 日 (11.10.2001) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 東亜合成株式会社 (TOAGOSEI CO., LTD.) [JP/JP]; 〒105-8419 東京都港区西新橋一丁目1番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 森 嘉男 (MORI, Yoshio) [JP/JP]; 〒455-0027 愛知県名古屋市港区船見町1番地の1 東亜合成株式会社高分子材料研究所内 Aichi (JP). 足立 幸一 (ADACHI, Koichi) [JP/JP]; 〒455-0027 愛知県名古屋市港区船見町1番地の1 東亜合成株式会社高分子材料研究所内 Aichi (JP).
- (81) 指定国 (国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (広域): ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, SK, TR), OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:  
— 国際調査報告書
- 2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: COMPOSITION, AMPHOTERIC POLYMERIC FLOCCULANT AND USE OF BOTH

(54) 発明の名称: 組成物、両性高分子凝集剤及びこれらの用途

(57) Abstract: A composition which contains an amphoteric polymeric component comprising cationic monomer units, anionic monomer units, and, if necessary, nonionic monomer units as the constituent units and exhibiting a 0.5 % salt viscosity of 10 to 120 mPa·s, wherein both a first amphoteric polymer satisfying the relationship (1) and a second amphoteric polymer satisfying the relationship (2) or a third amphoteric polymer satisfying the relationships (3) and (4) are contained as the amphoteric polymeric component:  $Ca_1/An_1 \geq 1 \dots (1) Ca_2/An_2 < 1 \dots (2) Ca_3/An_3 \geq 1 \dots (3) [(Ca_1 - An_1) - (Ca_3 - An_3)] \geq 1.5 \dots (4)$  [wherein  $Ca_1$  and  $An_1$  are respectively the numbers of cationic monomer units and anionic monomer units of the first amphoteric polymer as calculated by assuming the total number of all the constituent units of the polymer to be 100; and  $Ca_2$  and  $An_2$  and  $Ca_3$  and  $An_3$  are similarly the numbers of cationic monomer units and anionic monomer units of the second and third amphoteric polymers respectively]. The composition exhibits excellent flocculation and dewatering performances against various sludges, particularly even against sludge having a high surplus ratio, and is also useful as a yield improver in papermaking.

[続葉有]

WO 03/020829 A1



## (57) 要約:

カチオン性単量体単位、アニオン性単量体単位及び所望によりノニオン性単量体単位を構成単量体単位とし、0.5%塩粘度が10～120 mPa・sである両性高分子を含む組成物であって、該両性高分子として、下記式(1)を満たす第一の両性高分子と、下記式(2)を満たす第二の両性高分子又は下記式(3)及び式(4)を満たす第三の両性高分子とを含む組成物:

$$Ca_1 / An_1 \geq 1 \quad \dots\dots (1)、$$

$$Ca_2 / An_2 < 1 \quad \dots\dots (2)、$$

$$Ca_3 / An_3 \geq 1 \quad \dots\dots (3)、$$

$$|(Ca_1 - An_1) - (Ca_3 - An_3)| \geq 1.5 \quad \dots\dots (4)$$

〔尚、 $Ca_1$ 及び $An_1$ は、それぞれ、上記第一の両性高分子における全構成単量体単位の合計量を100モルに換算した場合における、全カチオン性単量体単位量及び全アニオン性単量体単位量のモル数を表し、 $Ca_2$ 及び $An_2$ 並びに $Ca_3$ 及び $An_3$ 、それぞれ前記と同様に、上記第二及び第三の両性高分子における全カチオン性単量体単位量及び全アニオン性単量体単位量のモル数を表す。〕

が提供される。該組成物は、種々の汚泥に対して凝集脱水性能に優れ、特に余剰比率の大きい汚泥に対しても凝集脱水性能に優れ、また、抄紙用歩留向上にも使用できる。

## 明 細 書

組成物、両性高分子凝集剤及びこれらの用途技術分野

本発明は、凝集力及び脱水性に優れ、濾過速度が速く、優れたフロック  
5 を得ることができるという各種凝集脱水性に優れる組成物及び両性高分子凝集剤並びにこれらの汚泥の脱水用途、抄紙用歩留向上用途、及びその他の用途に関するものである。

背景技術

従来、汚泥の脱水処理には、カチオン性高分子凝集剤が単独で使用され  
10 ているが、近年、汚泥発生量の増加及び汚泥性状の悪化により、従来のカチオン性高分子凝集剤では、汚泥の処理量に限界があることや、脱水ケーキ含水率、SS回収率及びケーキのろ布からの剥離性等の点で処理状態は必ずしも満足できるものではなく、これらの点を改善することが要求されている。

15 従来のカチオン性高分子凝集剤のこれら欠点を改良するために、種々の両性高分子凝集剤やこれを使用した脱水方法が種々提案されている。

例えば、(1)無機汚泥を含まない無機凝集剤を添加したpHが5～8の有機質汚泥に、特定イオン当量のカチオンリッチ両性高分子凝集剤を添加する汚泥の脱水方法(特公平5-56199号公報)、(2)pHが5  
20 ～8の有機質汚泥に、アクリレート系カチオン性高分子凝集剤と両性高分子凝集剤を併用する汚泥の脱水方法(特許2933627号公報)、(3)汚泥に無機凝集剤を添加しpHを5未満に設定し、特定組成のアニオンリッチ両性高分子凝集剤を添加する脱水方法(特公平6-239号公報)及び  
25 (4)排水に無機凝集剤、アニオン性高分子凝集剤及びカチオンリッチ両性高分子凝集剤を順次添加する有機性排水の処理方法(特開平6-13

4 2 1 3号公報)等が知られている。

しかしながら、前記(1)～(4)の脱水方法は、それなりに特長を有するものではあるが、最近の廃水の難脱水化傾向に対して、必ずしも有効的な方法とは言い難いものであった。

5 即ち、廃水処理後のCOD値をより低いものとする要求があるため、廃水に対する活性汚泥処理の比率が従来より高くなっており、汚泥脱水処理を行なう汚泥は余剰汚泥を多く含んだものとなり、又製紙廃水においては、廃水中の繊維分の回収率が上昇しているため、汚泥中の繊維分含有量が低  
10 くなり、従来の高分子凝集剤や汚泥脱水方法では対応できない場合があった。

一方、抄紙工程においては、従来より填料を含む紙料を抄紙機に送入する最終濃度に希釈する際、又は希釈後に、歩留向上剤を添加して、抄紙機からの白水中へ填料流出を抑制し、歩留を向上させている。

歩留向上剤としては、通常、水溶性の高分子量のカチオン性重合体が使  
15 用されている。より具体的には、カチオン性のアクリルアミド系ポリマー、その部分加水分解物やマンニッヒ変性物等が挙げられ、最近では、紙料に対してカチオン性ポリマーを添加した後、ベントナイトを添加する歩留り向上方法(特開平4-281095号等)や、紙料に対してアクリルアミ  
20 ド系ポリマーとアニオン性アルミニウム含有シリカゾルを併用添加する方法(特許第2945761号等)が注目されている。これらに用いられるアクリルアミド系ポリマーは、単量体固形分を10～40質量%として、水溶液重合等で製造され、水溶液重合で得られた重合体は、通常高粘稠ペースト状のものである。このため、歩留向上剤として使用するに際しては、水によりそのペーストを0.1～0.5質量%に希釈して、水溶液で使  
25 される。

この様な歩留向上剤は、パルプ繊維間の結合力を増加させ、最終製品の破裂及び伸び等の強度を増加させる目的で使用される紙力増強剤とは、抄紙工程における添加タイミングや、使用される重合体の分子量が本質的に異なる。即ち、添加タイミングとしては、紙力増強剤は、紙料に硫酸バンド等の定着剤を添加した後に添加されるのに対して、歩留向上剤は、抄紙機に送入する直前で紙料に添加して、できるだけ紙料パルプ懸濁物フロックの凝集を破壊しないようにする必要がある。使用する重合体の分子量に関しては、紙力増強剤が分子量数十万であるのに対し、歩留向上剤は百万を超える高分子量体でないと、十分な歩留性が実現できない。又そのような高分子量体であるからこそ、紙力増強剤の添加量がパルプに対して0.1～0.5質量%であるのに対して、歩留向上剤では0.01～0.05質量%であり、極少量が添加される。以上の性質から明らかなように、歩留向上剤には、排水処理で使用する凝集剤に近い性質が要求される。

このような歩留向上剤は、分子量が100万超過の高分子量体であるため、重合後に得られる水分を含有するペースト状重合体は、水への溶解性が極めて乏しく、実際の抄紙工程で水溶液として使用する場合、完全に希釈されるまでに極めて長時間を要するという問題を有するものであった。

また、従来の歩留向上剤は、歩留向上性能が不十分であり、特に中性抄紙領域での歩留性能に大きな欠点を有するものであった。最近では、抄紙工程のクローズ化が進められており、再利用された水及びパルプ繊維には、填料を由来とする水溶性無機物等が多く混在しており、従来の歩留向上剤では、歩留性能が不十分であった。

本発明は、種々の汚泥に対して凝集脱水性能に優れ、特に余剰比率の大きい汚泥に対しても凝集脱水性能に優れる組成物、高分子凝集剤及び汚泥の脱水方法、並びに水への溶解性に優れ、抄紙工程における歩留向上性能

に優れる歩留向上剤を見出すため鋭意検討を行ったのである。

### 発明の開示

本発明者らは、前記課題を解決すべく種々の検討を行なった結果、カチオン性単量体単位とアニオン性単量体単位との共重合割合の異なる2種以上の両性高分子を含む組成物が有効であることを見出し、本発明を完成した。

以下に、本発明を詳細に説明する。

尚、本明細書においては、アクリレート又はメタクリレートを（メタ）アクリレートと表し、アクリルアミド又はメタクリルアミドを（メタ）アクリルアミドと表し、アクリル酸又はメタクリル酸を（メタ）アクリル酸と表す。

### 1. 組成物

本発明の組成物を構成する両性高分子としては、カチオン性単量体単位及びアニオン性単量体単位を必須構成単量体単位とする共重合体であれば良い。

カチオン性単量体としては、ジメチルアミノエチル（メタ）アクリレート、ジエチルアミノエチル（メタ）アクリレート及びジエチルアミノ-2-ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート等のジアルキルアミノアルキル（メタ）アクリレートの塩酸塩及び硫酸塩等の3級塩；ジアルキルアミノアルキル（メタ）アクリレートの塩化メチル付加物等のハロゲン化アルキル付加物及び塩化ベンジル付加物等のハロゲン化アリール付加物等の4級塩；N，N-ジメチル（メタ）アクリルアミド等のジアルキル（メタ）アクリルアミド等の塩酸塩及び硫酸塩等の3級塩；ジアルキル（メタ）アクリルアミドの塩化メチル付加物等のハロゲン化アルキル付加物及び塩化ベンジル付加物等のハロゲン化アリール付加物等の4級塩等が挙げられる。

アニオン性単量体としては、（メタ）アクリル酸及びこのナトリウム塩等のアルカリ金属塩又はアンモニウム塩；マレイン酸等及びそれらのアルカリ金属塩；アクリルアミドー２－メチルプロパンスルホン酸等のアクリルアミドアルキルアルカンスルホン酸及びこのアルカリ金属塩又はアンモニウム塩；並びにビニルスルホン酸及びこのアルカリ金属塩又はアンモニウム塩等が挙げられる。

両性高分子としては、必要に応じて前記単量体以外の単量体、具体的にはノニオン性単量体を併用したものであっても良い。ノニオン性単量体としては、（メタ）アクリルアミド、ジメチルアミノエチル（メタ）アクリレート等のジアルキルアミノアルキル（メタ）アクリレート、ジアルキルアミノプロピル（メタ）アクリルアミド等のジアルキルアミノアルキル（メタ）アクリルアミド、スチレン、アクリロニトリル、酢酸ビニル、アルキル（メタ）アクリレート、アルコキシアルキル（メタ）アクリレート、ビニルピリジン、ビニルイミダゾール及びアリルアミン等を挙げることができる。これらの中でも、（メタ）アクリルアミドが好ましい。

いずれの単量体も、単独又は２種以上を使用することができる。

本発明における好ましい単量体の組合せとしては、①カチオン性単量体としてジアルキルアミノアルキルアクリレートの３級塩又は４級塩、アニオン性単量体としてアクリル酸塩及びノニオン性単量体としてアクリルアミドからなる共重合体、②カチオン性単量体としてジアルキルアミノアルキルメタクリレートの３級塩又は４級塩、アニオン性単量体としてアクリル酸塩及びノニオン性単量体としてアクリルアミドからなる共重合体、並びに③カチオン性単量体としてジアルキルアミノアルキルメタクリレートの３級塩又は４級塩、ジアルキルアミノアルキルアクリレートの３級塩又は４級塩、アニオン性単量体としてアクリル酸塩及びノニオン性単量体と

してアクリルアミドからなる共重合体がある。

本発明における両性高分子は、分子量の指標である 0.5 % 塩粘度が、  
10 ~ 120 mPa · s であるものであり、後記する両性高分子凝集剤と  
して使用する場合、安定した脱水処理を達成するためには、15 ~ 90 m  
5 Pa · s が好ましい。

本発明において 0.5 % 塩粘度とは、4 % 塩化ナトリウム水溶液に両性  
高分子を 0.5 重量 % 溶解した試料を 25 °C で、B 型粘度計にて、ロータ  
ー No. 1 又は 2 を用いて、60 rpm で測定した値をいう。

両性高分子の製造方法については特に制限はなく、一般的な重合方法を  
10 採用することができる。例えば、水溶液重合であれば、重合開始剤として  
過硫酸カリウム、過硫酸アンモニウム、2,2'-アゾビス(2-アミジノ  
プロパン)二塩酸塩や、レドックス系の重合開始剤等を用いて、熱ラジカ  
ル重合を行なう方法や、ベンゾイン及びアセトフェノン型の光重合開始剤  
を用いて紫外線照射により光ラジカル重合を行なうこともできる。又、逆  
15 相のエマルション重合であれば、前記重合開始剤以外に、アゾビスイソブ  
チロニトリルや過酸化ベンゾイル等の水不溶性開始剤を用いて重合を行っ  
ても良い。

得られたゲル状の重合体は、その後、公知の方法で切断・細断する。細  
断した重合体は、バンド式乾燥機、回転式乾燥機、遠赤外線式乾燥機及び  
20 振動流動式乾燥機等の乾燥機を使用し、温度 60 ~ 150 °C 程度で乾燥し、  
ロール式粉碎機等で粉末状の共重合体とされ、粒度調整される。

本発明の組成物は、カチオン性単量体単位とアニオン性単量体単位の共  
重合割合が異なる 2 種以上の両性高分子を含むものであり、具体的には、  
下記式 (1) を満たす第一の両性高分子と、下記式 (2) を満たす第二の  
25 両性高分子又は下記式 (3) 及び式 (4) を満たす第三の両性高分子とを



併用してなるものである。

$$Ca_1 / An_1 \geq 1 \quad \dots (1)、$$

$$Ca_2 / An_2 < 1 \quad \dots (2)、$$

$$Ca_3 / An_3 \geq 1 \quad \dots (3)、$$

$$5 \quad |(Ca_1 - An_1) - (Ca_3 - An_3)| \geq 1.5 \quad \dots (4)$$

〔尚、 $Ca_1$ 及び $An_1$ は、それぞれ、上記第一の両性高分子における全構成単量体単位の合計量を100モルに換算した場合における、全カチオン性単量体単位量及び全アニオン性単量体単位量のモル数を表し、 $Ca_2$ 及び $An_2$ は、それぞれ前記と同様に、上記第二の両性高分子における全カチオン性単量体単位量及び全アニオン性単量体単位量のモル数を表し、 $Ca_3$ 及び $An_3$ は、それぞれ前記と同様に、上記第三の両性高分子における全カチオン性単量体単位量及び全アニオン性単量体単位量のモル数を表す。〕

本発明の好ましい実施態様によれば、当該両性高分子として、カチオンリッチな第一の両性高分子とアニオンリッチな第二の両性高分子とが併用  
15 される。この場合、第一の両性高分子としては、 $Ca_1 / An_1$ が1.5～10.0のものが、第二の両性高分子としては $Ca_2 / An_2$ が0.5～0.9のものが好ましい。

本発明の他の好ましい実施態様によれば、いずれもカチオンリッチ両性  
20 高分子である第一の両性高分子及び第三の両性高分子の2種が併用され、換言すれば、それらを構成するカチオン性単量体単位とアニオン性単量体単位の差が大きいものと小さいものとを併用するものである。この場合、組成物中の全両性高分子における全構成単量体単位中のノニオン性単量体単位の割合が60モル%以上であること、即ちイオン性単量体単位が40  
25 モル%未満であることが好ましい。この実施態様においては、 $Ca_1 / A$

$n_1$ としては1.2～40.0が好ましく、 $Ca_3/An_3$ としては1.2～40.0が好ましい。 $| (Ca_1 - An_1) - (Ca_3 - An_3) |$ としては1.5～40.0が好ましい。この値が1.5に満たないと、凝集剤として使用した場合、本発明の様な高性能の凝集性能を発揮できない。組成物中の両性高分子における全構成単量体単位中のノニオン性単量体単位の割合が60モル%に満たないと、凝集剤として使用した場合、凝集力が低下する場合がある。

上記第一、第二及び第三の両性高分子は、前記単量体単位割合を満たす様にカチオン性単量体単位とアニオン性単量体単位と必要に応じてノニオン性単量体単位とを共重合して得ることができる。

本発明の組成物は、上記第一の両性高分子に上記第二の両性高分子又は第三の両性高分子を混合することにより製造することができる。又、後記する汚泥の脱水や抄紙工程においては、それぞれの成分を別々に添加することもできる。

第一、第二及び第三の両性高分子としては、それぞれ1種を使用することも、2種以上を併用することもでき、上記第一、第二及び第三の両性高分子の1種づつを使用することが簡便であり好ましい。

組成物における両性高分子の割合としては、目的に応じて適宜設定すれば良いが、第一の両性高分子と第二の両性高分子とを併用する場合、第一の両性高分子が20～60質量%及び第二の両性高分子が40～80質量%の範囲が好ましく、また、第一の両性高分子と第三の両性高分子とを併用する場合、第一の両性高分子が10～90質量%及び第三の両性高分子が90～100質量%の範囲が好ましい。

## 2. 用途

本発明の組成物は、種々の用途に応用することが可能である。例えば、

高分子凝集剤、及び塗料用等の増粘剤等が挙げられる。高分子凝集剤としては、汚泥脱水剤、及び歩留向上剤等の製紙工程における抄紙用薬剤等が挙げられる。

本発明で得られる組成物は、高分子凝集剤として有用なものであり、特に汚泥脱水剤及び歩留向上剤として有用なものである。以下、汚泥脱水剤及び歩留向上剤について説明する。

#### 1) 汚泥脱水剤及び汚泥の脱水方法

本発明の汚泥脱水剤（以下、両性高分子凝集剤ということもある）の使用に際しては、硫酸水素ナトリウム、硫酸ナトリウム及びスルファミン酸等、脱水処理に悪影響がでないかぎり公知の添加剤と混合して使用しても良い。

本発明の汚泥脱水剤は、種々の汚泥に適用可能であり、下水、し尿、並びに食品工業、化学工業及びパルプ又は製紙工業汚泥等の一般産業排水で生じる有機性汚泥及び凝集沈降汚泥を含む混合汚泥等を挙げることができる。

本発明の汚泥脱水剤は、特に繊維分が少ない汚泥、即ち余剰比率の高い汚泥に好ましく適用できるものである。具体的には、余剰比率が5 S S %以上の汚泥に好ましく適用でき、より好ましくは5 ~ 8 0 S S %の汚泥に適用できる。第一の両性高分子と第二の両性高分子を併用する態様は、余剰比率が2 0 S S %以上、好ましくは2 0 ~ 8 0 S S %の汚泥に適用するのに好都合である。また、第一の両性高分子と第三の両性高分子を併用する態様は、余剰比率が5 S S %以上、好ましくは5 ~ 4 0 S S %の汚泥に適用するのに好都合である。

本発明の汚泥脱水剤を使用する脱水方法は、具体的には、汚泥に汚泥脱水剤を添加した後、これにより汚泥フロックを形成させるものである。フ

ロックの形成方法は、公知の方法に従えば良い。

又、必要に応じて、無機凝集剤、有機カチオン性化合物、カチオン性高分子凝集剤及びアニオン性高分子凝集剤を併用することができる。

無機凝集剤としては、硫酸アルミニウム、ポリ塩化アルミニウム、塩化  
5 第二鉄、硫酸第一鉄及びポリ硫酸鉄等を例示できる。

有機カチオン性化合物としては、ポリマーポリアミン、ポリアミジン及びカチオン性界面活性剤等を例示できる。

無機凝集剤又は有機カチオン性化合物を添加した場合においては、pH  
を4～8とすることが、より効果的に汚泥の処理を行うことができるため  
10 好ましい。

pHの調整方法としては、無機凝集剤又は有機カチオン性化合物を添加した後、当該pH値を満たす場合は、特にpH調整の必要はないが、本発明で限定する範囲を満たさない場合は、酸又はアルカリを添加して調整する。

15 酸としては、塩酸、硫酸、酢酸及びスルファミン酸等を挙げることができる。又、アルカリとしては、苛性ソーダ、苛性カリ、消石灰及びアンモニア等が挙げられる。

カチオン性高分子凝集剤としては、前記したカチオン性単量体の単体重合体及び前記したカチオン性単量体及びノニオン性単量体の共重合体等を  
20 挙げることができる。

アニオン性高分子凝集剤としては、前記したアニオン性単量体の単体重合体及び前記したアニオン性単量体及びノニオン性単量体の共重合体等を挙げることができる。

本発明において、繊維分が少ない汚泥、即ち余剰比率の高い汚泥を使用  
25 する場合においては、アニオン性高分子凝集剤と併用することが好ましい。

この場合において、高分子凝集剤の汚泥への添加の方法としては、別々でも同時でも良いが、アニオン性高分子凝集剤を添加した後、両性高分子凝集剤を添加することが、これら高分子凝集剤の併用効果が最も大きくなるため好ましい。

- 5 第一及び第二の両性高分子を併用する場合、アニオン性高分子凝集剤としては、アニオン性単量体単位が30モル%以上の共重合割合である共重合体からなるものが好ましく、40モル%以上であることが更に好ましい。

- 第一及び第三の両性高分子を併用する場合、アニオン性高分子凝集剤としては、アニオン性単量体単位が5モル%以上の共重合割合である共重合  
10 体からなるものが好ましい。

いずれの場合も、アニオン性高分子凝集剤及び両性高分子凝集剤の併用割合としては、使用する全高分子凝集剤の合計量に対してアニオン性高分子凝集剤が1～70質量%、両性高分子凝集剤が99～30質量%であることが好ましい。

- 15 又、汚泥に添加する凝集剤は、使用する全高分子凝集剤の合計したカチオン性単量体単位とアニオン性単量体単位の割合が、下記式(5)を満足する様に添加することが好ましい。

$$0.3 \leq C a_{all} / A n_{all} \leq 1.0 \quad \dots (5)$$

- 〔尚、上記式(5)において、 $C a_{all}$  及び  $A n_{all}$  は、それぞれ、全使用高  
20 分子凝集剤の全カチオン性単量体単位量及び全アニオン性単量体単位量の合計量を100モルに換算した場合における、全カチオン性単量体単位量及び全アニオン性単量体単位量のモル数を表す。〕

- この範囲外で使用すると、フロックの造粒性が乏しくなったり、全凝集剤の必要添加量が異常に増加したりし、得られるケーキの含水率が高くな  
25 ることがある。

第一の両性高分子と第二の両性高分子とを併用する場合、上記割合が、下記式（５－１）を満足するように添加することがさらに好ましい。

$$0.3 \leq C a_{all} / A n_{all} \leq 4.0 \quad (5-1)$$

〔尚、上記式（５－１）において、 $C a_{all}$  及び  $A n_{all}$  は、上記式（５）と同様。〕

第一の両性高分子と第三の両性高分子とを併用する場合、上記割合が、下記式（５－２）を満足するように添加することが更に好ましい。

$$0.5 \leq C a_{all} / A n_{all} \leq 10.0 \quad (5-2)$$

〔尚、上記式（５－２）において、 $C a_{all}$  及び  $A n_{all}$  は、上記式（５）と同様。〕

両性高分子凝集剤、その他凝集剤の添加量、攪拌速度、攪拌時間等は、従来行われている脱水条件に従えば良い。

第一及び第二の両性高分子を併用する場合、第一及び第三の両性高分子を併用する場合、いずれの場合も、両性高分子凝集剤の汚泥に対する添加割合としては、５～５００ｐｐｍが好ましく、ＳＳに対しては０．０５～１質量％が好ましい。両性高分子凝集剤とその他高分子凝集剤を併用する場合は、全高分子凝集剤の合計量が前記添加割合を満たすことが好ましい。

このようにして形成したフロックは、公知の手段を用いて脱水し、脱水ケーキとする。

脱水装置としては、スクリュूपレス型脱水機、ベルトプレス型脱水機、フィルタープレス型脱水機及びスクリュードカンター等を例示することが出来る。

又、本発明の汚泥脱水剤は、濾過部を有する造粒濃縮槽を使用する脱水方法にも適用可能である。

具体的には、汚泥に、無機凝集剤を添加し、さらに汚泥脱水剤を添加し

た後、又は汚泥脱水剤と共に、該汚泥を濾過部を有する造粒濃縮槽に導入し、該濾過部からろ液を取り出すと共に造粒し、この造粒物を脱水機で脱水処理する方法等が挙げられる。

## 2) 歩留向上剤及び抄紙方法

5 本発明の組成物を歩留向上剤として使用する場合、組成物原料の両性高分子としては、粉末状のものが好ましい。又、実際の使用にあたっては、原料の両性高分子を水に溶解させ、0.01～0.5質量%水溶液として使用することが好ましく、より好ましくは0.01～0.1質量%水溶液である。

10 歩留向上剤としては、第一及び第二の両性高分子を併用した組成物が好ましい。

歩留向上剤の使用方法としては常法に従えばよく、例えば、紙料を抄紙機に送入する最終濃度に希釈する際、又は希釈後に添加する。

歩留向上剤が適用される紙料としては、通常の抄紙工程で使用されるものであればよく、通常、少なくともパルプ及び填料を含み、必要に応じて15 填料以外の添加剤、具体的には、サイズ剤、定着剤、紙力増強剤及び着色剤等を含むものである。

20 填料としては、白土、カオリン、アガライト、タルク、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、硫酸石灰、硫酸バリウム、酸化亜鉛及び酸化チタン等が挙げられる。サイズ剤としては、アクリル酸・スチレン共重合体等が挙げられ、定着剤としては、硫酸バンド、カチオン澱粉及びアルキルケテンダイマー等が挙げられ、紙力増強剤としては、澱粉及びカチオン性または両性ポリアクリルアミド等が挙げられる。

歩留向上剤の添加方法としては、組成物の水溶液を添加することもでき、25 又は組成物原料の両性高分子の水溶液を添加した後、別の両性高分子の水

溶液を添加することもできる。

歩留向上剤の好ましい添加割合としては、紙料中の乾燥パルプ質量当たり、0.05～0.8質量%が好ましく、より好ましくは0.05～0.5質量%である。

- 5 歩留向上剤としては、前記した  $C_{a_{all}}$  及び  $A_{n_{all}}$  の割合が、前記式（5-1）を満たすように添加することが好ましい。

歩留向上剤の添加後の紙料のpHとしては、5～10に維持することが好ましく、より好ましくは5～8である。歩留向上剤の添加後に、紙料は直ちに抄紙機に送入される。

#### 10 実施例

以下に実施例及び比較例を挙げ、本発明をより具体的に説明する。

なお、以下において、「部」とは質量部を意味する。

各例で使用した両性高分子及びアニオン性高分子凝集剤は、それぞれ下記表I-1及び表I-2に示す粉状のものを使用した。

- 15 又、各表における略号は、以下の意味を示す。

- ・DAC：ジメチルアミノエチルアクリレートの塩化メチル4級塩
- ・AA：アクリル酸
- ・AMD：アクリルアミド



表 I - 1

両性高分子	構成単量体 (モル比)	C a / A n	0.5%塩粘度 (mPa・s)
C R - 1	DAC/AA/AMD (42/5/53)	8 . 4 0	7 1
C R - 2	DAC/AA/AMD (60/15/25)	4 . 0 0	7 0
C R - 3	DAC/AA/AMD (12/2/86)	6 . 0 0	8 5
C R - 4	DAC/AA/AMD (60/5/35)	1 2 . 0 0	6 0
A R - 1	DAC/AA/AMD (30/35/35)	0 . 8 6	3 5
C O - 1	DAC/AA/AMD (33/28/39)	1 . 1 8	4 5
C O - 2	DAC/AA/AMD (40/28/32)	1 . 4 3	4 4
C O - 3	DAC/AA/AMD (19/3/78)	6 . 3 3	8 0

表 I - 2

アニオン性高分子凝集剤	構成単量体 (モル比)	0.5%塩粘度 (mPa・s)
A N - 1	AA (100)	7 0
A N - 2	AA/AMD (50/50)	1 2 0

## 5 ○実施例 I - 1

両性高分子として C R - 1 の 2 5 部と A R - 1 の 7 5 部を使用し、これらを混合して組成物を製造し、これを両性高分子凝集剤 B L - 1 (表 I - 3) として使用した。

古紙パルプ廃水のスカム廃水 (SS : 3 3 4 0 0 m g / l、VSS : 1 6 9 0 0 m g / l、繊維分 : 2 9 0 m g / l) と余剰汚泥 (SS : 1 0 7 0 0 m g / l、VSS : 8 2 0 0 m g / l、繊維分 : 8 0 m g / l) の 5 : 4 5 (SS%) 混合汚泥 2 0 0 m l を 3 0 0 m l のビーカーに採取し、

これに両性高分子凝集剤を添加した後、空の 300 ml のビーカーに移液し、計 5 回移液操作を実施した後、スパーテルにて 50 回攪拌してフロックを形成させた。この時のフロックの造粒性を下記の 3 段階で評価し、得られたフロックの粒径を測定した。

- 5      その後、80 メッシュ濾布をフィルターとして用いて、前記汚泥フロック分散液を重力濾過し、10 秒後の濾液容量を測定し、これを濾過速度とした。又、濾布上のケーキの自立性と得られた濾液の外観を下記の 3 段階で評価した。

- 10      得られたケーキを 4 mm  $\phi$  のパンチングメタルに挟み、6.5 kg  $\times$  3 分間の荷重をかけ、パンチング穴から逸脱したケーキ重量（パンチング漏れ）を秤ると共に、濾布への剥離性を下記の 3 段階で評価した。

評価結果を表 I - 4 に示す。実施例 I - 1 の汚泥脱水方法は、評価を行った全ての凝集性能に優れるものであった。

・造粒性

- 15      優；攪拌すると直ちに粒径の大きなフロックを形成した。良；攪拌をしばらく続けると粒径の大きなフロックを形成した。不良；攪拌を続けても粒径の小さなフロックしか形成しなかった。

・濾過外観

優；完全に透明。良；僅かに浮遊物有り。不良；多くの浮遊物有り。

- 20      ・自立性

重力濾過時にフロック分散液を円筒に流し込み、濾過後、円筒を取り外したときにおいて、

優：完全にケーキが自力で立った。良：僅かにケーキが流れた。不良：ケーキが流れてしまった。

・剥離性

ケーキを濾布からはがした時における濾布の状況が、

優：全く汚れなかった。良：僅かに汚れた。不良：汚れてしまった。

○実施例 I - 2 ～ 同 I - 5

- 5 両性高分子凝集剤として、下記表 I - 3 に示す両性高分子を使用して実施例 I - 1 と同様にして製造した B L - 2 も使用した。

汚泥に、表 I - 4 に示すアニオン性高分子凝集剤を添加した後、表 I - 4 に示す両性高分子凝集剤を添加する以外は実施例 I - 1 と同様にして、汚泥の脱水処理を行なった。

- 0 実施例 I - 1 と同様に評価した結果を表 I - 4 に示す。実施例 I - 2 ～ 同 I - 5 の汚泥脱水方法は、いずれの場合も評価を行なった全ての凝集性能に優れるものであった。

表 I - 3

両性高分子 凝集剤	使用両性高分子 (部)		混合構成単量体 平均比 (モル比)	混合後 C a / A n
B L - 1	C R - 1 (25)	A R - 1 (75)	DAC/AA/AMD (33/28/39)	1 . 1 8
B L - 2	C R - 2 (40)	A R - 1 (60)	DAC/AA/AMD (40/28/32)	1 . 4 3

表 I - 4

実施例	使用凝集剤			評価結果						
	アニオン性 高分子凝集剤 (ppm)	両性高分子凝集剤 (ppm)	$Ca_{all}/An_{all}$	造粒性	フロック径 (mm)	濾過速度	濾過外観	ハドンチン が漏れ (g)	自立性	剥離性
I-1	0	BL-1 (180)	1.18	良	10 ~ 13	145	良	0.3	良	優
I-2	AN-1 (7)	BL-1 (173)	0.99	優	10 ~ 20	165	良	0.0	優	優
I-3	AN-2 (11)	BL-1 (169)	1.01	優	10 ~ 15	160	良	0.0	優	良
I-4	AN-1 (15)	BL-2 (165)	1.00	優	8 ~ 15	155	良	0.1	優	良
I-5	AN-2 (25)	BL-2 (155)	1.00	優	5 ~ 10	150	良	0.2	優	良

## ○比較例 I - 1

汚泥に、表 I - 5 に示す両性高分子凝集剤を使用した以外は実施例 I - 1 と同様にして、汚泥の脱水処理を行なった。

実施例 I - 1 と同様に評価した結果を表 I - 5 に示す。

比較例 I - 1 で使用した両性高分子凝集剤 CO - 1 の構成単量体比率は、実施例 I - 1 で使用した両性高分子凝集剤 BL - 1 の混合後の構成単量体比率が同じものであったが、いずれの凝集性能も不十分なものであった。

## 10 ○比較例 I - 2 及び同 I - 3

汚泥に、表 I - 5 に示すアニオン性高分子凝集剤及び両性高分子凝集剤を使用した以外は実施例 I - 2 ~ I - 5 と同様にして、汚泥の脱水処理を行なった。

実施例 I - 1 と同様に評価した結果を表 I - 5 に示す。

15 比較例 I - 2 及び同 I - 3 で使用した両性高分子凝集剤の CO - 1 及び CO - 2 の構成単量体比率は、それぞれ両性高分子凝集剤の BL - 1 及び BL - 2 の混合後の構成単量体比率が同じものであったが、いずれの凝集

性能も不十分なものであった。

表 I - 5

比較例	使用凝集剤			評価結果						
	アニオン性凝集剤 (ppm)	両性高分子凝集剤 (ppm)	Ca <sub>all</sub> /An <sub>all</sub>	造粒性	フロック径 (mm)	濾過速度	濾過外観	ハドンチンが漏れ (g)	自立性	剥離性
I-1	0	CO-1 (180)	1.18	不良	1~2	45	濁り	4	良	不良
I-2	AN-1 (10)	CO-1 (170)	1.00	不良	1~2	80	濁り	2	良	不良
I-3	AN-1 (16)	CO-2 (164)	0.99	不良	1~2	85	濁り	3	良	不良

### ○実施例 II-1

- 5      両性高分子としてCR-1の30部とCR-3の70部を使用し、これらを混合して組成物を製造し、これを両性高分子凝集剤BL-3（表II-1）として使用した。

製紙・パルプ排水混合汚泥（SS：47900mg/l、VSS：29000mg/l、繊維分：8500mg/l）200mlを300mlのビーカーに採取し、これに両性高分子凝集剤を添加した後、空の300mlのビーカーに移液し、計5回移液操作を実施した後、スパーテルにて50回攪拌してフロックを生成させた。この時のフロックの造粒性を実施例I-1と同様に3段階で評価し所定回数攪拌後のフロックの粒径を評価した。

- 15      その後、80メッシュ濾布をフィルターとして用いて、前記汚泥フロック分散液を重力濾過し、10秒後の濾液容量を測定し、これを濾過速度とした。又、濾布上のケーキの自立性と得られた濾液の外観と濾布への剥離性を実施例I-1と同様に3段階で評価した。

ケーキの含水率は、得られた汚泥フロックを濾布の上にのせ、ミニベル

- 20 -

ト機を用い、走行速度 0.5 m/分、0.5 kg/cm<sup>2</sup> で 3 段圧搾後、ケーキを 105℃×12 時間加熱後、その減量値から求めた。

評価結果を表 II-2 に示す。実施例 II-1 の汚泥脱水方法は、評価を行った全ての凝集性能に優れるものであった。

5

表 II-1

両性高分子凝集剤	使用両性高分子(部)		混合構成単量体平均比(モル比)	(Ca <sub>1</sub> -An <sub>1</sub> )-(Ca <sub>2</sub> -An <sub>2</sub> )	ノニオン性単量体/全単量体(モル%)	混合後 Ca/An
BL-3	CR-1 (30)	CR-3 (70)	DAC/AA/AMD (19/3/78)	27	78	6.3

表 II-2

実施例	使用凝集剤		評価結果						
	両性高分子凝集剤 (ppm)	Caa11/Ana11	造粒性	フロック径 (mm)	濾過速度	濾過外観	含水率 (%)	自立性	剥離性
II-1	BL-3 (60)	6.33	良	3~5	90	良	61.1	良	良

### ○比較例 II-1

10 汚泥に、表 II-3 に示す両性高分子凝集剤を使用した以外は実施例 II-1 と同様にして、汚泥の脱水処理を行なった。

実施例 II-1 と同様に評価した結果を表 II-3 に示す。

比較例 II-1 で使用した両性高分子凝集剤 CO-3 の構成単量体比率は、実施例 II-1 で使用した両性高分子凝集剤 BL-3 の混合後の構成単量体  
15 比率が同じものであったが、いずれの凝集性能も不十分なものであった。

表 II-3

比較例	使用凝集剤		評価結果						
	両性高分子凝集剤 (ppm)	Ca <sub>411</sub> /An <sub>411</sub>	造粒性	フロック径 (mm)	濾過速度	濾過外観	含水率 (%)	自立性	剥離性
II-1	CO-3 (60)	6.33	不良	1~2	50	濁り	63.1	良	不良

## ○実施例 III-1 及び同 III-2

歩留向上剤として、CR-1 の 70 部と AR-1 の 30 部の割合で、それらの合計量 0.05 質量% 含む水溶液を使用した。歩留向上剤の製造は、CR-1 及び AR-1 を攪拌下に水に添加し、添加後 30 分で溶解したが、さらに 30 分攪拌した。これを歩留向上剤 BL-4 (表 III-1) という。

同様に、CR-4 の 60 部と AR-1 の 40 部の割合で、それらの合計量 0.05 質量% 含む水溶液を、前記と同様にして製造した。これを歩留向上剤 BL-5 (表 III-1) という。

L B K P シートを離解、叩解した C S F = 450 ml の 1 質量% パルプスラリーを調製し、1000 rpm で攪拌しながら、下記①~⑤の成分をこの順で添加し、ダイナミックドレネージジャー法にて総歩留率を測定した。得られた結果を表 III-2 に示す。パルプスラリーの最終 pH は 7.2 であった。

①軽質炭酸カルシウム：20 質量% (パルプサラリー中のパルプ固形分に対する割合。以下対パルプという)

②カチオン澱粉：0.3 質量% (対パルプ)

③硫酸バンド：1.7 質量% (対パルプ)

④紙力増強剤〔DAC/AA/AM=20/10/70 (モル比) の共重合体の 15 質量% 水溶液。粘度；3500 mPa・s〕；0.5 質量% (対パルプ)

⑤歩留向上剤：250ppm（固形分、対パルプ）

### ○実施例 III-3

実施例 III-1 において、歩留向上剤として、両性高分子 AR-1 の 0.05 質量%の水溶液を 70ppm（固形分、対パルプ）を添加した後、両性高分子 CR-1 の 0.05 質量%の水溶液を固形分として 175ppm（固形分、対パルプ）を添加した以外は実施例 III-1 と同様の方法により歩留向上剤としての性能を評価した。得られた結果を表 III-2 に示す。

### ○比較例 III-1

歩留向上剤として、カチオン性アクリル系重合体〔DAC：AM=10/90（モル比）の共重合体、0.5%塩粘度 70mPa・s、ペースト状品〕0.05 質量%含む水溶液を使用した。歩留向上剤の製造は、カチオン A を攪拌下に水に添加したが、完全に溶解するまで 180 分を要した。これを歩留向上剤カチオン A という。

実施例 III-1 において、歩留向上剤として、カチオン A の 250ppm（固形分、対パルプ）を使用した以外は、実施例 III-1 と同様の方法により歩留向上剤としての性能を評価した。得られた結果を表 III-2 に示す。

表 III-1

歩留向上剤	使用両性高分子 （部）		混合構成単量体 平均比 （モル比）	混合後 Ca/An
BL-4	CR-1 (70)	AR-1 (30)	DAC/AA/AMD (38/15/47)	2.57
BL-5	CR-4 (60)	AR-1 (40)	DAC/AA/AMD (46/19/35)	2.39



表 III-2

	歩留向上剤 (ppm)					総歩留 (%)
	第一添加				第二添加	
	BL-4	BL-5	AR-1	好む A	CR-1	
実施例 III-1	250	—	—	—	—	86.6
実施例 III-2	—	250	—	—	—	87.1
実施例 III-3	—	—	75	—	175	87.2
比較例 III-1	—	—	—	250	—	84.1

### 産業上の利用可能性

本発明の組成物は、両性高分子凝集剤として使用した場合、汚泥脱水剤  
 5 として種々の汚泥に対して、特に余剰比率の高い汚泥に対しても、濾過速度が速く、得られるフロックは粒径が大きく、自立性及び剥離性に優れるという各種凝集脱水性能に優れたものとなり、また、歩留向上剤として、抄紙工程での歩留向上を達成することができる。

## 請 求 の 範 囲

1. カチオン性単量体単位、アニオン性単量体単位及び所望によりノニ  
オン性単量体単位を構成単量体単位とし、0.5%塩粘度が10～120  
mPa・sである両性高分子を含む組成物であって、該両性高分子として、  
5 下記式(1)を満たす第一の両性高分子と、下記式(2)を満たす第二の  
両性高分子又は下記式(3)及び式(4)を満たす第三の両性高分子とを  
含む組成物：

$$Ca_1 / An_1 \geq 1 \quad \dots (1)、$$

$$Ca_2 / An_2 < 1 \quad \dots (2)、$$

$$10 \quad Ca_3 / An_3 \geq 1 \quad \dots (3)、$$

$$| (Ca_1 - An_1) - (Ca_3 - An_3) | \geq 1.5 \quad \dots (4)$$

- 〔尚、 $Ca_1$ 及び $An_1$ は、それぞれ、上記第一の両性高分子における全構  
成単量体単位の合計量を100モルに換算した場合における、全カチオン  
性単量体単位量及び全アニオン性単量体単位量のモル数を表し、 $Ca_2$ 及  
15 び $An_2$ は、それぞれ前記と同様に、上記第二の両性高分子における全カ  
チオン性単量体単位量及び全アニオン性単量体単位量のモル数を表し、 $C$   
 $a_3$ 及び $An_3$ は、それぞれ前記と同様に、上記第三の両性高分子における  
全カチオン性単量体単位量及び全アニオン性単量体単位量のモル数を表  
す。〕

- 20 2. 両性高分子として、上記第一の両性高分子と第二の両性高分子とを  
含む請求の範囲1記載の組成物。

3. 両性高分子として上記第一の両性高分子と第三の両性高分子とを含  
み、いずれの両性高分子もカチオン性単量体単位、アニオン性単量体単位  
及びノニオン性単量体単位を必須構成単量体単位し、組成物中の全両性高  
25 分子における全構成単量体単位中のノニオン性単量体単位の割合が60モ

ル%以上である請求の範囲 1 記載の組成物。

4. 請求の範囲 1 記載の組成物を含有してなる両性高分子凝集剤。

5. 両性高分子として、上記第一の両性高分子と第二の両性高分子とを含む請求の範囲 4 記載の両性高分子凝集剤。

5 6. 両性高分子として上記第一の両性高分子と第三の両性高分子とを含み、いずれの両性高分子もカチオン性単量体単位、アニオン性単量体単位及びノニオン性単量体単位を必須構成単量体単位とし、組成物中の全両性高分子における全構成単量体単位中のノニオン性単量体単位の割合が 60 モル%以上である請求の範囲 4 記載の両性高分子凝集剤。

10 7. 汚泥に対して、請求の範囲 4 記載の両性高分子凝集剤を添加し、次いで脱水することを特徴とする汚泥の脱水方法。

8. 両性高分子として、上記第一の両性高分子と第二の両性高分子とを含む請求の範囲 7 記載の汚泥の脱水方法。

9. 両性高分子として上記第一の両性高分子と第三の両性高分子とを含み、いずれの両性高分子もカチオン性単量体単位、アニオン性単量体単位及びノニオン性単量体単位を必須構成単量体単位とし、組成物中の全両性高分子における全構成単量体単位中のノニオン性単量体単位の割合が 60  
15 モル%以上である請求の範囲 7 記載の汚泥の脱水方法。

10. さらにアニオン性高分子凝集剤を併用することを特徴とする請求  
20 の範囲 8 記載の汚泥の脱水方法。

11. 前記アニオン性高分子凝集剤が、アニオン性単量体単位が 30 モル%以上の共重合割合である共重合体からなる請求の範囲 10 記載の汚泥の脱水方法。

12. さらにアニオン性高分子凝集剤を併用することを特徴とする請求  
25 の範囲 9 記載の汚泥の脱水方法。

13. 前記アニオン性高分子凝集剤が、アニオン性単量体単位が5モル%以上の共重合割合である共重合体からなる請求の範囲12記載の汚泥の脱水方法。

14. 使用する全高分子凝集剤の合計したカチオン性単量体単位とアニオン性単量体単位の割合が、下記式(5)を満足する様に汚泥に高分子凝集剤を添加することを特徴とする請求の範囲7記載の汚泥の脱水方法。

$$0.3 \leq C a_{all} / A n_{all} \leq 1.0 \quad \dots (5)$$

[尚、上記式(5)において、 $C a_{all}$  及び  $A n_{all}$  は、それぞれ、全使用高分子凝集剤の全カチオン性単量体単位量及び全アニオン性単量体単位量の合計量を100モルに換算した場合における、全カチオン性単量体単位量及び全アニオン性単量体単位量のモル数を表す。]

15. 使用する全高分子凝集剤の合計したカチオン性単量体単位とアニオン性単量体単位の割合が、下記式(5-1)を満足する様に汚泥に高分子凝集剤を添加することを特徴とする請求の範囲8、10及び11のいずれか1項に記載の汚泥の脱水方法。

$$0.3 \leq C a_{all} / A n_{all} \leq 4.0 \quad \dots (5-1)$$

[尚、上記式(5-1)において、 $C a_{all}$  及び  $A n_{all}$  は、それぞれ、全使用高分子凝集剤の全カチオン性単量体単位量及び全アニオン性単量体単位量の合計量を100モルに換算した場合における、全カチオン性単量体単位量及び全アニオン性単量体単位量のモル数を表す。]

16. 使用する全高分子凝集剤の合計したカチオン性単量体単位とアニオン性単量体単位の割合が、下記式(5-2)を満足する様に汚泥に高分子凝集剤を添加することを特徴とする請求の範囲9、12及び13のいずれか1項に記載の汚泥の脱水方法。

$$0.5 \leq C a_{all} / A n_{all} \leq 1.0 \quad \dots (5-2)$$

〔尚、上記式(5-2)において、 $C a_{all}$  及び  $A n_{all}$  は、それぞれ、全使用高分子凝集剤の全カチオン性単量体単位量及び全アニオン性単量体単位量の合計量を100モルに換算した場合における、全カチオン性単量体単位量及び全アニオン性単量体単位量のモル数を表す。〕

- 5 17. 請求の範囲2記載の組成物を含有してなる抄紙用歩留向上剤。
18. 紙料に対して、請求の範囲17記載の歩留向上剤を添加し、次いで抄紙することを特徴とする抄紙方法。
19. 使用する全歩留向上剤の合計したカチオン性単量体単位とアニオン性単量体単位の割合が、下記式(5-1)を満足する様に歩留向上剤を添
- 10 加する請求の範囲18記載の方法。

$$0.3 \leq C a_{all} / A n_{all} \leq 4.0 \quad \dots (5-1)$$

- 〔尚、上記式(5-1)において、 $C a_{all}$  及び  $A n_{all}$  は、それぞれ、全使用歩留向上剤の全カチオン性単量体単位量及び全アニオン性単量体単位量の合計量を100モルに換算した場合における、全カチオン性単量体単位量
- 15 及び全アニオン性単量体単位量のモル数を表す。〕

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/08974

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> C08L101/00, B01D21/01, C02F11/14

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> C08L1/00-101/16, B01D21/01, C02F11/14

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

WPI/L

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 6225395 B1 (ELF ATOCHEM SA), 01 May, 2001 (01.05.01), Claims; examples & JP 11-217410 A Claims; examples & EP 915103 A1	1-19
A	JP 8-112504 A (Sanyo Chemical Industries, Ltd.), 07 May, 1996 (07.05.96), Claims; examples (Family: none)	1-19
A	JP 6-88030 A (Röhm GmbH.), 29 March, 1994 (29.03.94), Claims; examples & EP 573793 A1 & US 5403883 A	1-19

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"I" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&amp;" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
05 December, 2002 (05.12.02)Date of mailing of the international search report  
17 December, 2002 (17.12.02)Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (July 1998)

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/08974

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 63-252600 A (Mitsui Saianamitsudo Kabushiki Kaisha), 19 October, 1988 (19.10.88), Claims; examples (Family: none)	1-19

Form PCT/ISA/210 (continuation of second sheet) (July 1998)

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C08L101/00, B01D21/01, C02F11/14

## B. 調査を行った分野

## 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C08L1/00-101/16, B01D21/01, C02F11/14

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

## 国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI/L

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	US 6225395 B1 (ELF ATOCHEM SA) 2 001.05.01, 特許請求の範囲、実施例 & JP 11-217410 A, 特許請求の範囲、実施例 & EP 915103 A1	1-19
A	JP 8-112504 A (三洋化成工業株式会社) 1996. 05.07, 特許請求の範囲、実施例 (ファミリーなし)	1-19

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

05.12.02

国際調査報告の発送日

17.12.02

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

藤本 保

4 J

9552

(印)

電話番号 03-3581-1101 内線 3495



## C (続き). 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP 6-88030 A (レーム ゲゼルシャフト ミット ベ シュレンクテル ハフツング) 1994. 03. 29, 特許請求の範囲、実施例 & EP 573793 A1 & US 5403883 A	1-19
A	JP 63-252600 A (三井サイアナミツド株式会社) 1 988. 10. 19, 特許請求の範囲、実施例 (ファミリーなし)	1-19